

is made to be absorbed by a silica gel. A treatment process mainly consisting of Purex process, is a process, for instance, that is constituted by crushing and sieving process of the spent fuel, a dissolution process by a conc nitric acid, a solvent extraction process of a tributyl phosphate by an n-dodecan solution, a reverse extraction process by a thin-nitric acid, a concrete solidification and a vitrification process of radioactive wastes, and the like. A method to control the composition of nitrogen oxides so that the nitrogen dioxide may be a dominant component, could be an ordinary method.

COPYRIGHT: (C)1991,JPO&Japio

## ⑫ 公開特許公報 (A)

平3-24499

⑬ Int. Cl. 5

G 21 F 9/02

識別記号 511 A 廷内整理番号 8908-2G

⑭ 公開 平成3年(1991)2月1日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全2頁)

⑮ 発明の名称 放射性廃ガス中ルテニウムの除去方法

⑯ 特 願 平1-159860

⑰ 出 願 平1(1989)6月22日

⑱ 発明者 田中 忠三郎 桶城県北茨城市中郷町汐見ヶ丘8-103

⑲ 発明者 前口 浩人 桶城県那珂郡東海村豊岡1873-2

⑳ 出願人 住友金属鉱山株式会社 東京都港区新橋5丁目11番3号

㉑ 代理人 弁理士 篠原 泰司 外1名

## 明細書

## 1. 発明の名称

放射性廃ガス中ルテニウムの除去方法

## 2. 特許請求の範囲

使用済核燃料をピュレックス法を主体とした方法で処理し、ウランとプルトニウムを回収すると同時に核分裂生成物を分離し固化した後保管する工程に於いて、前記工程で発生する廃ガス中の窒素酸化物組成を二酸化窒素が主体となるように制御した後、該廃ガスをシリカゲルに吸着させようとした、放射性廃ガス中ルテニウムの除去方法。

## 3. 発明の詳細な説明

## 〔産業上の利用分野〕

本発明は、使用済核燃料再処理工場から発生する廃ガス中に含有されるルテニウムの除去方法に関する。

## 〔従来の技術〕

使用済核燃料再処理工場では、ウラン(U)、プルトニウム(Pu)及び各種の核分裂生成物を含有する使用済核燃料を濃硝酸に溶解し、トリブ

チルフォスフェート(TBP)のn-ドデカン溶液でUとPuとを溶媒抽出した後、再度希硝酸で逆抽出を行なう所謂ピュレックス法によって処理されている。

上記工程においては、硝酸溶解時、廃液濃縮時及びガラス、コンクリート等による濃縮廃液の固化処理時において、NO<sub>x</sub>、NO等の窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)や水分及びダストと共に核分裂生成物のうち揮発し易い元素として放射性ルテニウム(Ru)が混入したガスが発生する。これらの廃ガスをサイクロン及びスクラバー等の乾式及び湿式処理の後、シリカゲル等の吸着剤を充填した吸着塔に通している。そして、上記NO<sub>x</sub>及びダスト等は乾式及び湿式処理にてほとんど除去されるが、核分裂生成物含有の廃ガスはシリカゲル等の吸着剤によって初めて除去される。

## 〔発明が解決しようとする課題〕

しかしながら、放射性Ruはシリカゲルに対して吸着量が極めて低いので(例えば1gのRuに対して4~5mg/g程度)、絶えず新しいシリカ

ゲルに交換しなければならず、そのため大量の放射性廃棄物が発生し、その処理及び保管が極めて大変であった。

本発明は、上記問題点に鑑み、放射性廃棄物になるシリカゲルの発生量を低く抑えることのできる放射性廃ガス中のルテニウムの除去方法を提供することを目的としている。

#### [課題を解決するための手段]

本発明による放射性廃ガス中のルテニウムの除去方法は、使用済核燃料をピュレックス法を主体とした方法で処理し、ウランとブルトニウムを回収すると同時に核分裂生成物を分離し固化した後保管する工程に於いて、前記工程で発生する廃ガス中の窒素酸化物組成を二酸化窒素が主体となるように制御した後、該廃ガスをシリカゲルに吸着させるようにした点に特徴がある。

#### [作用]

ピュレックス法を主体とした方法で処理する工程とは、例えば、使用済核燃料の粉碎、篩別、濃硝酸による溶解、トリプチルfosfateのn

実施するにあたり、 $[NO_x] / [NO]$  を  $1 / 2$  を越えるようにすることが必要であり、より好みしくは  $1$  以上が好適である。窒素酸化物組成を  $NO_x$  が主体であるように制御する方法は通常の方法で良く、例えば廃ガスを送る系内に  $NO_x$  を吹き込む方法や  $NO$  を触媒等で酸化させて  $NO_x$  に変換する方法等が挙げられる。 $NO_x$  が主体である廃ガスは、一般の廃ガス処理設備例えばサイクロンやスクラバーや電気集塵機等で  $NO_x$  を除去して  $NO_x$  として  $100 \text{ ppm}$  以上～ $5000 \text{ ppm}$  以下となるようにした後、シリカゲルを充填した吸着塔に通気して  $Ru$  を吸着させて除去する。シリカゲル吸着塔は水分乾燥用のもので差し支えない。

#### [実施例]

内径  $25 \text{ mm}$ 、高さ  $780 \text{ mm}$  の吸着塔内にシリカゲルを充填し、この吸着塔内へ温度  $70^\circ\text{C}$ 、線速度  $0.3 \text{ m/sec}$  で、 $Ru$  を  $RuO_x$  の形態で含む廃ガスを供給した。

廃ガスの組成が  $N_2 75 \sim 80 \text{ vol. \%}$ 、 $O_2$

～ドデカン溶液による溶媒抽出、希硝酸による逆抽出、放射性廃棄物のコンクリート固化及びガラス固化等よりなる工程であり、上記工程に使用される設備の他、廃ガス処理設備、廃液処理設備等の付属設備を当然含むものである。そして、上記工程に於いて発生する廃ガスとは、窒素酸化物 ( $NO_x$ )、水分、核分裂生成物を含有する粉塵とガス及び主成分である空気等からなるものである。又、通常の使用済核燃料再処理工場での廃ガス組成調査によれば、二酸化窒素濃度 ( $NO_x$ ) と一酸化窒素濃度 ( $NO$ ) との比 ( $NO_x$ ) / ( $NO$ ) は約  $1 / 2$  であり、二酸化窒素 ( $NO_x$ ) が少ない。

そこで、本発明者等が廃ガス中の窒素酸化物中の ( $NO_x$ ) の割合を増加させたところ、シリカゲルに吸着される  $Ru$  の量が大幅に増加することが発見された。これは、 $Ru$  は  $NO_x$  と複合化合物を形成してシリカゲルに吸着されるものと思われ、 $NO_x$  が多い程該複合化合物の量が多くなることが原因であると思われる。実際本発明方法を

$15 \sim 20 \text{ vol. \%}$ 、水分  $4 \text{ vol. \%}$ 、 $NO_x 2000 \text{ ppm}$  ( $[NO_x] / [NO] = 1 / 2$ )、 $Ru 0.3 \text{ mg} / Nl$  の時にシリカゲルに吸着された  $Ru$  は、約  $4 \sim 5 \text{ mg} / g$  であったが、 $NO_x$  組成を  $NO_x 2000 \text{ ppm}$  ( $[NO_x] / [NO] = 1 / 0$ ) とした時にシリカゲルに吸着された  $Ru$  は、約  $17 \sim 18 \text{ mg} / g$  であった。

従って、本発明方法によれば、 $Ru$  を含有する放射性廃棄物としてのシリカゲルの発生量を大幅に減少させることができる。

#### [発明の効果]

上述のごとく、本発明による放射性廃ガス中ルテニウムの除去方法によれば、放射性廃棄物になるシリカゲルの発生量を低く抑えることのでき、従ってその処理及び保管が容易になるという実用上極めて重要な利点を有している。

代理人 篠原泰司

代理人 鈴木三義

